Präzisionsbestimmungen der Zerfallsraten radioaktiver Präparate nach der Koinzidenzmethode mit Hilfe von Szintillationszählern

---

INAUGURALDISSERTATION

zur Erlangung der philosophischen Doktorwürde
vorgelegt der
Philosophisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität Basel

1963

von

REINHART FROSCH
aus Zürich

Basel
Buchdruckerei Birkhäuser AG.
1964

Präzisionsbestimmungen der Zerfallsraten radioaktiver Präparate nach der Koinzidenzmethode mit Hilfe von Szintillationszählern

---

INAUGURALDISSERTATION

zur Erlangung der philosophischen Doktorwürde
vorgelegt der
Philosophisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität Basel

von

REINHART FROSCH
aus Zürich

Basel
Buchdruckerei Birkhäuser AG.
1964

Genehmigt von der Philosophisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät auf Antrag der Herren Prof. Dr. P. HUBER und Prof. Dr. E. BAUMGARTNER.

Basel, den 17. Dezember 1963

Prof. Dr. E. BAUMGARTNER
Dekan

UNIVERSITEITSBIBLIOTHEEK - LEIDEN

Separatabdruck aus Helvetica Physica Acta, 37. Jahrgang, Heft 4/5, 1964

Präzisionsbestimmungen der Zerfallsraten radioaktiver Präparate nach der Koinzidenzmethode mit Hilfe von Szintillationszählern

Summary. This paper is concerned with the measurement of radioactive decay rates by means of a coincidence apparatus with scintillation counters only. Such an apparatus is specially suited for the γ-γ-coincidence method, but measurements with the β-γ- and the α-γ-coincidence method are also feasible. The accuracy of the source strength determination is improved as follows:

The effect that two coinciding particles may generate pulses in the same scintillator is taken into account by a new 'sum-pulse'-correction factor. Formulas for this factor in the β-γ- and the γ-γ-method are derived. Experimental and theoretical ways of determining the factor are discussed.

Measurements of ^{198}Au with the β-γ-method and ^{60}Co with the γ-γ-method are described as examples. To test the precision, samples of ^{60}Co calibrated by several laboratories using the $4\pi\beta$-γ-method were remeasured with the γ-γ-method. The results agree within the experimental errors, which in the most favorable case amounted to 0.2% for both methods.

1. Einleitung

Mit einem einzigen Detektor und entsprechend geringem elektronischem Aufwand können Zerfallsraten radioaktiver Präparate im allgemeinen nicht mit hoher Präzision gemessen werden, da die Ansprechwahrscheinlichkeit des Zählers nicht genau genug bestimmt werden kann. Bei Präparaten eines Isotops, dessen Zerfallsschema gewissen Bedingungen genügt, kann aber durch Anwendung der Koinzidenzmethode erreicht werden, dass die Zähler-Ansprechwahrscheinlichkeiten nur in höherer Ordnung ins Resultat der Zerfallsratenmessung eingehen. Die wichtigste der Bedingungen, denen das Zerfallsschema genügen muss, ist die, dass zwei koinzidierende Strahlungen auftreten, also zwei Strahlungen, deren Quanten beim Zerfall eines Kerns in einem zeitlichen Abstand ausgesandt werden, der in einem genügend grossen Teil der Fälle einen genügend kleinen Wert nicht überschreitet, wobei dieser Grenzwert durch die apparativen Auflösungszeiten und durch die erforderliche Messgenauigkeit bestimmt ist. Bei verzweigten Zerfallsschemata muss ferner, wenn nicht alle Zweige über ein gemeinsames Zwischenniveau führen, das Verzweigungsverhältnis mit einer genügenden Genauigkeit bekannt sein.

Das allgemeine Prinzip der Koinzidenzmethode ist unter anderen von PUTMAN [1]) beschrieben worden. PUTMAN erwähnt auch neben der klassischen β-γ-Koinzidenzmethode bereits eine primitive Form der γ-γ-Koinzidenzmethode [2]).

Die vorliegende Arbeit ist die Fortsetzung der detaillierten Untersuchungen, die MEYER, SCHMID und HUBER[3]) über Zerfallsratenmessungen mit einer ausschliesslich mit Szintillationszählern arbeitenden Koinzidenzapparatur nach BELL, GRAHAM und PETCH[4]) durchgeführt haben. Um diese Messmethode für Präzisionsmessungen geeignet zu machen, war eine genauere Berücksichtigung der sogenannten Summenimpulse notwendig, worauf als erster PEELLE*) hingewiesen hatte. Summenimpulse entstehen, wenn zwei koinzidierende Quanten im selben Szintillator einen Effekt erzeugen.

Im ersten Teil der Arbeit (Abschnitt 2) werden Formeln für die Korrekturfaktoren, die zur Berücksichtigung der Summenimpulse angebracht werden müssen, aus idealisierten Voraussetzungen abgeleitet; diese Voraussetzungen sind so gewählt, dass als einzige Korrektur diejenige für die Summenimpulse auftritt. Die übrigen Korrekturen, die bei praktischen Messungen angebracht werden müssen, sind in Abschnitt 3 zusammengestellt. Abschnitt 4 enthält die Beschreibung der verwendeten Koinzidenzapparatur, Abschnitt 5 Angaben über die durchgeführten Absolutbestimmungen.

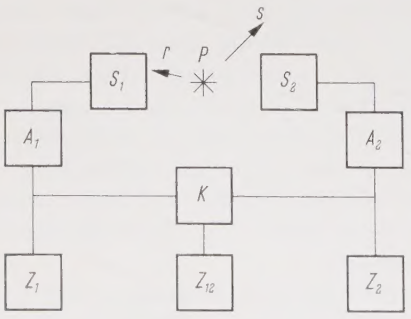
2. Herleitung von Formeln für den Summenimpuls-Korrekturfaktor K_V

2.1. Voraussetzungen über das Präparat

Im Präparat P (Figur 1) sollen pro Zeiteinheit im Mittel eine Anzahl N von Kernzerfällen stattfinden (N ist also die zu messende Grösse). Jeder Kernzerfall emittiere ein Strahlungsquant r und ein Strahlungsquant s aus dem Präparat (zum Beispiel ein β- und ein γ-Quant oder zwei γ-Quanten). Ausser r und s sollen keine anderen Strahlungen ausgesandt werden. Zwischen den Quanten r und s existiere keine Winkelkorrelation. Die Zeitdifferenz zwischen der Emission zweier Quanten r und s, die vom selben Kern herrühren, soll kleiner sein als die kleinste in der Apparatur auftretende Auflösungszeit. Selbstabsorption und Streuung im Präparat P sollen vernachlässigbar sein.

2.2. Voraussetzungen über die Apparatur

Figur 1 zeigt das Blockschema der verwendeten Apparatur. Weggelassen sind in Figur 1 linearverstärkende Elemente (Photovervielfacher, Vor- und Hauptverstärker) sowie eine hochauflösende Koinzidenzstufe, die allein dazu dient, die Anzahl der zufälligen Koinzidenzen zu vermindern. Sämtliche Totzeiteffekte in der Apparatur



S_i Szintillatoren ($i = 1$ oder 2)
A_i Impulshöhen-Analysatoren
K Koinzidenzstufe
Z_i, Z_{12} Zähler

Fig. 1
Vereinfachtes Blockschema der Apparatur

*) R. W. PEELLE (Oak Ridge), Private Mitteilung an Prof. MEYER.

(unter anderem auch zufällige Koinzidenzen), Nulleffekt, ferner Rückstreuung von einem Szintillator in den andern sollen vernachlässigbar sein.

2.3. Herleitung von Formeln für die Zählraten in den Zählern Z_i und Z_{12}

Die Zählraten in den drei Zählern sind unter den soeben festgelegten Voraussetzungen proportional zur Zerfallsrate N; ausserdem hängen sie noch von den Ansprechwahrscheinlichkeiten der Szintillatoren S_i und der Einstellung der Impulshöhen-Analysatoren A_i ab.

Wenn W_{ij} die Ansprechwahrscheinlichkeit des Szintillators S_i für die Strahlung j (j steht für r oder s) ist, so werden in S_i pro Zeiteinheit im Mittel durch die Strahlung j eine Anzahl

$$M_{ij} = W_{ij} N \tag{1}$$

Impulse erzeugt. Die Menge $(M_{ir} + M_{is})$ aller im Szintillator S_i pro Zeiteinheit im Mittel erzeugten Impulse zerfällt in drei Teile:

- Ein erster Teil enthält alle jene Fälle, bei denen das r-Quant in S_i einen Impuls erzeugt, das zugehörige s-Quant dagegen nicht. Dieser Teil enthält

$$m_{ir} = N W_{ir} (1 - W_{is}) \tag{2}$$

  Impulse. Diese sogenannten ir-Einzelimpulse bilden bezüglich ihrer Höhe ein für die Strahlung r und für den Szintillator S_i charakteristisches Spektrum, dessen Fläche den Betrag m_{ir} aufweist. Wenn zum Beispiel r ein γ-Quant und S_i ein organischer Szintillator ist, entsteht angenähert ein Compton-Spektrum (Figur 2).
- Der zweite Teil enthält die is-Einzelimpulse und bildet ebenfalls ein charakteristisches Spektrum. Dieser Teil enthält

$$m_{is} = N W_{is} (1 - W_{ir}) \tag{3}$$

  Impulse.
- Der dritte Teil enthält die $i(r + s)$-Summenimpulse. Diese entstehen, wenn zwei im gleichen Zerfall entstehende Quanten r und s im selben Szintillator S_i je einen Impuls erzeugen. Diese zwei Impulse können nach Voraussetzung von der Apparatur nicht getrennt werden und wirken sich also wie ein einziger, im Mittel höherer Summenimpuls aus. Dieser dritte Teil enthält

$$m_{i(r+s)} = N W_{ir} W_{is} \tag{4}$$

  Summenimpulse. Das Summenimpulsspektrum kann aus den beiden Einzelimpulsspektren mit Hilfe eines Faltungsintegrals (siehe Gleichung 40) berechnet werden.

Figur 2 zeigt die drei Teilspektren für den Fall, dass sowohl r wie s γ-Quanten sind und organische Szintillatoren verwendet werden.

Der Analysator A_i lässt von jeder der drei soeben definierten Teilmengen einen bestimmten Bruchteil durch:

- von den ir-Einzelimpulsen einen Bruchteil V_{ir},
- von den is-Einzelimpulsen einen Bruchteil V_{is},
- von den $i(r + s)$-Summenimpulsen einen Bruchteil $V_{i(r+s)}$.

Für die zu beschreibende Messmethode ist es wesentlich, dass mit der Einstellung der Analysatoren A_i auch die Zählwahrscheinlichkeit V_{ij} und damit die Gesamt-

ansprechwahrscheinlichkeiten variiert werden können. In Figur 2 ist angenommen, dass A_i ein Diskriminator ist. Aus der Figur ist ersichtlich, dass zum Beispiel eine Verschiebung des Diskriminatorpegels E_{Ai} nach oben die Zählwahrscheinlichkeiten V_{ij} verkleinert.

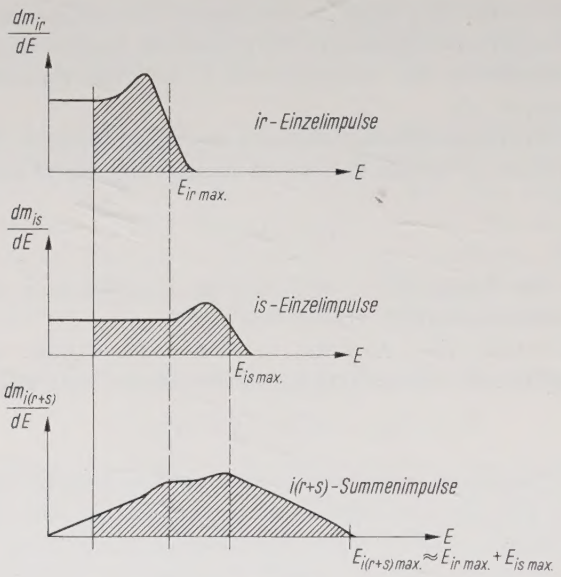


Fig. 2

Spektrum einer γ-γ-Kaskade, aufgenommen mit einem organischen Szintillator (S_i), zerlegt in 2 Einzelimpulsspektren und das Summenimpulsspektrum (überhöht gezeichnet). Die Flächen der Spektren sind gleich den Impulsmengen m_{ij}, die Quotienten aus dem schraffierten Teil einer Fläche und der Gesamtfläche gleich den Zählwahrscheinlichkeiten V_{ij}.

Mit diesen Definitionen ergeben sich in den Einzelzählern Z_i folgende Zählraten:

$$N_i = m_{ir}\, V_{ir} + m_{is}\, V_{is} + m_{i(r+s)}\, V_{i(r+s)}. \tag{5}$$

Einsetzen von (2), (3) und (4) in (5) ergibt nach leichter Umformung:

$$\boxed{N_i = N\,[W_{ir}\, V_{ir} + W_{is}\, V_{is} - W_{ir}\, W_{is}\,(V_{ir} + V_{is} - V_{i(r+s)})]}. \tag{6}$$

Für die Koinzidenzzählrate im Zähler Z_{12} erhält man aus der Voraussetzung, dass die Wahrscheinlichkeiten W_{ir} und W_{is} voneinander unabhängig sind (keine Winkelkorrelation):

$$\boxed{N_{12} = N\,[W_{1r}\, V_{1r}\, W_{2s}\, V_{2s} + W_{1s}\, V_{1s}\, W_{2r}\, V_{2r}]}. \tag{7}$$

2.4. Die «klassische» Beta-Gamma-Koinzidenzmethode

Wenn r ein β- und s ein γ-Quant ist, so lässt sich die Forderung der klassischen Koinzidenzmethode, dass der eine Zähler nur r-, der andere nur s-Quanten zählt, wenigstens angenähert erfüllen: Vor dem Szintillator S_2 soll die β-Strahlung absorbiert werden (zum Beispiel durch Graphit; Bremsstrahlung i. A. vernachlässigbar; $W_{2\beta} = 0$).

Der Szintillator S_1 soll so dünn sein, dass seine γ-Ansprechwahrscheinlichkeit klein gegen seine β-Ansprechwahrscheinlichkeit ist (Figur 3):

$$\frac{W_{1\gamma}}{W_{1\beta}} = \varepsilon \ll 1. \tag{8}$$

Einsetzen von (8) in (6) und (7) ergibt folgende Beziehung zwischen den Zählraten und der Zerfallsrate:

$$N = \frac{N_1 N_2}{N_{12}} K_V; \qquad K_V = \left[1 + \varepsilon \left(\frac{V_{1\gamma}}{V_{1\beta}} - W_{1\beta} \frac{V_{1\beta} + V_{1\gamma} - V_{1(\beta+\gamma)}}{V_{1\beta}}\right)\right]^{-1}. \tag{9}$$

Durch den Korrekturfaktor K_V wird berücksichtigt, dass im β-Zähler Z_1 auch γ-Einzelimpulse und $(\beta + \gamma)$-Summenimpulse gezählt werden; die klassische Formel

$$N = \frac{N_1 N_2}{N_{12}} \tag{10}$$

gilt nur, wenn ε gegen 1 vernachlässigt wird und wenn die Zählwahrscheinlichkeit $V_{1\beta}$ nicht zu klein ist. Bei höheren Anforderungen an die Präzision muss K_V berechnet werden, worauf im Anhang eingegangen wird.

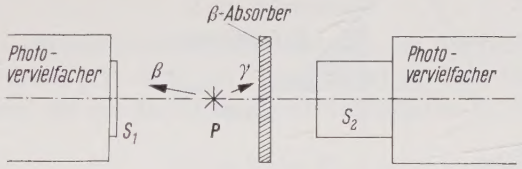


Fig. 3

Prinzipschema der Anordnung von Präparat, Absorber und Szintillatoren bei Messungen nach der β-γ-Methode

2.4a. Spezialfälle

Bei zwei Spezialfällen ist die Abweichung von der klassischen Formel (10) besonders klein:

– Die bekannte $4\pi\,\beta$-γ-Methode[5]) verlangt, dass die β-Ansprechwahrscheinlichkeit des Szintillators S_1 möglichst nahe an 1 angenähert wird*):

$$W_{1\beta} = 1 - \delta; \qquad \delta \ll 1 \tag{11}$$

und dass

$$V_{1\beta} = V_{1\gamma} = V_{1(\beta+\gamma)} = 1 \tag{12}$$

ist. (Der Analysator A_1 soll also weggelassen bzw. ganz geöffnet werden.) Einsetzen von (11) und (12) in (9) ergibt:

$$K_V = (1 + \delta\varepsilon)^{-1}; \tag{13}$$

Da δ und ε beide klein gegen 1 sind, weicht K_V hier nur schwach von 1 ab.

*) Bedingung (11) kann zum Beispiel dadurch erfüllt werden, dass das Präparat P in einem flüssigen Szintillator S_1 aufgelöst wird[6]); doch wird für diese Methode häufiger das 4π-Zählrohr verwendet[5]).

– Ein zweiter Spezialfall lässt sich dann verwirklichen, wenn die β-Maximalenergie grösser ist als die Maximalenergie der von der γ-Strahlung ausgelösten Comptonelektronen, was zum Beispiel bei ^{198}Au der Fall ist.

Die im Szintillator S_1, der aus einer organischen Substanz bestehen soll, durch die γ-Strahlung erzeugten Einzelimpulse können in diesem Fall durch den Analysator A_1 wegdiskriminiert werden; zu diesem Zweck wird als Analysator A_1 ein Diskriminator verwendet, dessen Pegel E_{A1} über die Höhe der von den energiereichsten Comptonelektronen, aber unter diejenige der von den energiereichsten β-Teilchen erzeugten Impulse gelegt wird (Figur 4). Es gilt somit:

$$V_{1\gamma} = 0\,, \qquad K_V = \left[1 + \varepsilon\, W_{1\beta}\, \frac{V_{1(\beta+\gamma)} - V_{1\beta}}{V_{1\beta}}\right]^{-1}. \tag{14}$$

Durch K_V wird berücksichtigt, dass in Z_1 neben den β-Einzelimpulsen auch $(\beta + \gamma)$-Summenimpulse gezählt werden. Damit $K_V \approx 1$ wird, muss $W_{1\beta} \ll 1$ sein, was durch genügend grossen Abstand zwischen Präparat P und Szintillator S_1 (Figur 3) erreichbar ist; ausserdem darf $V_{1\beta}$ nicht zu klein sein.

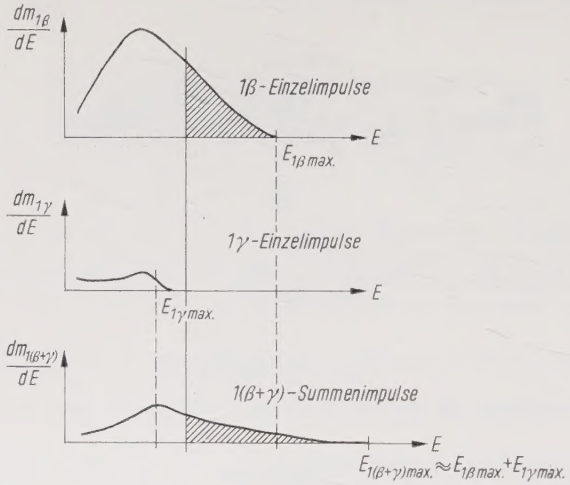


Fig. 4

Zu Fig. 2 analoge Darstellung einer β-γ-Kaskade des Typs ^{198}Au ($E_{1\beta\,max.} > E_{1\gamma\,max.}$) im «$\beta$-Szintillator» S_1

2.5. Die Gamma-Gamma-Koinzidenzmethode

Wenn sowohl r als auch s γ-Quanten sind, lässt sich die Forderung der klassischen Koinzidenzmethode (siehe vorangehenden Abschnitt) im allgemeinen nur sehr grob erfüllen, da sich die Absorptionseigenschaften der beiden Strahlungen nicht genügend stark unterscheiden. Besser geeignet ist in diesem Fall jene Version der Koinzidenzmethode, welche verlangt, dass in beiden Zählern die Gesamtansprechwahrscheinlichkeiten für beide Strahlungen gleich sind, dass also die Gleichungen

$$W_{ir}\, V_{ir} = W_{is}\, V_{is} \tag{15}$$

erfüllt sind. Diese Gleichungen lassen sich durch passende Einstellung der Analysatoren A_i erfüllen; in dem in Figur 2 dargestellten Fall (organische Szintillatoren; A_i Diskriminatoren) müssen die schraffierten Flächen im r- und im s-Einzelimpulsspektrum annähernd gleich sein. Auf die exakte Erfüllung der Bedingung (15) wird später eingegangen (Anhang II).

Einsetzen von (15) in (6) und (7) ergibt:

$$N = \frac{N_1 N_2}{2 N_{12}} K_V ; \quad K_V = K_{V1} K_{V2} ; \quad K_{Vi} = \left[1 - W_{ir} \frac{V_{ir} + V_{is} - V_{i(r+s)}}{2 V_{is}}\right]^{-1}. \quad (16)$$

Durch den Korrekturfaktor K_V wird das Auftreten von Summenimpulsen berücksichtigt, was aus der Herleitung der Formeln für die Zählraten N_i (Abschnitt 2.3) ersichtlich ist. Die einfache Formel

$$N = \frac{N_1 N_2}{2 N_{12}} \quad (17)$$

gilt nur, wenn die Ansprechwahrscheinlichkeiten W_{ir} gegen 1 vernachlässigt werden können und die Zählwahrscheinlichkeiten V_{is} nicht zu klein sind. Andernfalls muss K_V berechnet werden, worauf im Anhang eingegangen wird.

2.5a. Spezialfall

Auch bei der γ-γ-Koinzidenzmethode lässt sich ein Spezialfall verwirklichen, in dem die einfache Formel (17) exakt gilt: Wenn es gelingt, eine Einstellung der Analysatoren A_i zu finden, bei der die Zählwahrscheinlichkeiten V_{ij} den Gleichungen

$$V_{ir} + V_{is} = V_{i(r+s)} \quad (18)$$

genügen, und bei denen ferner die Hauptbedingungen (15) erfüllt bleiben, gilt nach (16): $K_V = 1$. Die Gleichung (17) gilt somit exakt. Die Hauptbedingung (15) und die Zusatzbedingung (18) lassen sich, wie in einer früheren Arbeit gezeigt wurde[7]), durch Verwendung von 2-Kanal-Analysatoren gleichzeitig erfüllen.

Der soeben beschriebene Spezialfall hat indessen geringe praktische Bedeutung: Um die Einstellung der 2-Kanal-Analysatoren zu finden, müssen die Spektren ermittelt und ausgewertet werden. Wenn aber die Spektren bekannt sind, kann der Korrekturfaktor K_V für den Fall, dass Diskriminatoren verwendet werden, berechnet werden. Ersetzen der Diskriminatoren durch 2-Kanal-Analysatoren bringt im allgemeinen keine erhöhte Messgenauigkeit mit sich: Die bei der Auswertung der Spektren (Bestimmung der V_{ij}) auftretenden Fehler haben einen Fehler von K_V zur Folge, der im Prinzip gleich gross ist, ob nun K_V den Wert 1 (mit 2-Kanal-Analysatoren) oder einen anderen Wert (mit Diskriminatoren) besitzt.

Anmerkung: Auch beim zweiten Spezialfall der β-γ-Methode würde die Erfüllung einer Zusatzbedingung

$$V_{1(\beta+\gamma)} = V_{1\beta} \quad (19)$$

bewirken, dass $K_V = 1$ wird und somit die klassische Formel (10) exakt gilt. Eine eingehende Untersuchung der zugehörigen Spektren (Figur 4) zeigt aber, dass in diesem Fall keine Einstellung eines noch so komplizierten Analysators gefunden werden kann, bei der die Zusatzbedingung (19) erfüllt wäre.

3. Weitere Korrekturfaktoren

Wenn die in den Abschnitten 2.1 und 2.2 zusammengestellten Voraussetzungen über Präparat und Apparatur nicht erfüllt sind, treten zu den bereits definierten Korrekturfaktoren für Summenimpulse (K_{Γ}) weitere Korrekturfaktoren für Ausdehnung des Präparates ($K_{\varkappa}$), Winkelkorrelation (K_{θ}), apparative Totzeiten (K_T), usw., hinzu. Ferner müssen von den gemessenen Zählraten Nulleffekt und zufällige Koinzidenzen subtrahiert werden. Die Korrekturfaktoren sollen einheitlich so definiert werden, dass folgende Beziehung zwischen der wahren Zerfallsrate N und den für Nulleffekt und zufällige Koinzidenzen korrigierten Zählraten N_1, N_2 und N_{12} gilt:

$$N = N_{exp.} K_V K_{\varkappa} K_{\theta} K_T \ldots \tag{20}$$

$$N_{exp.} = \begin{cases} \dfrac{N_1 N_2}{N_{12}} & (\beta\text{-}\gamma\text{-Methode}) \\ \dfrac{N_1 N_2}{2 N_{12}} & (\gamma\text{-}\gamma\text{-Methode}) \end{cases}$$

Im folgenden werden Formeln für diese Korrekturfaktoren angegeben. Der Herleitung dieser Formeln liegt die Voraussetzung zugrunde, dass die Abhängigkeit der Korrekturen voneinander (zum Beispiel die Abhängigkeit des Faktors K_{Γ} von der auftretenden Winkelkorrelation, usw.) vernachlässigbar ist. Der Übergang von «entkoppelten» zu «gekoppelten» Korrekturen bietet keine Schwierigkeiten, wenn konsequent von den fundamentalen Gleichungen (6) und (7) für die Zählraten ausgegangen wird*).

3.1. Ausdehnung des Präparates ($K_{\varkappa}$)

Nach PUTMAN[8]) ergibt sich für den Korrekturfaktor $K_{\varkappa}$ bei der β-γ-Methode (siehe Abschnitt 2.4):

$$K_{\varkappa} = 1 + \frac{1}{N} \int_{\tau_P} \varkappa_{1\beta}\, \varkappa_{2\gamma}\, n\, d\tau. \tag{21}$$

τ_P Volumen des Präparates,
n spezifische Zerfallsrate im Volumenelement $d\tau$.

Die in Gleichung (21) auftretenden Grössen $\varkappa_{ij}$ beschreiben die Abhängigkeit der «Gesamtansprechwahrscheinlichkeiten» ($W_{ij}\, V_{ij}$) vom Ort des zerfallenden Kerns. Die exakte Definition von $\varkappa_{ij}$ ist gegeben durch

$$W_{ij}\, V_{ij} = \overline{W_{ij}\, V_{ij}}\, (1 + \varkappa_{ij})\,, \tag{22}$$

worin $\overline{W_{ij}\, V_{ij}}$ die über das ganze Präparatvolumen τ_P gemittelte Gesamtansprechwahrscheinlichkeit ist, das heisst

$$\overline{W_{ij}\, V_{ij}} = \frac{1}{N} \int_{\tau_P} W_{ij}\, V_{ij}\, n\, d\tau. \tag{23}$$

*) Bei ^{60}Co-Präzisionsbestimmungen (siehe Abschnitt 5.2) musste zum Beispiel der Einfluss der Präparatausdehnung auf den Faktor K_{θ} und der Einfluss der Winkelkorrelation auf den Faktor K_V berücksichtigt werden. Die dazu benötigten Formeln sind im Anhang III zusammengestellt.

Für die γ-γ-Methode (siehe Abschnitt 2.5) ergibt eine zu derjenigen von PUTMAN[8]) analoge Rechnung:

$$K_\varkappa = 1 + \frac{1}{2N} \int_{\tau_P} (\varkappa_{1r}\, \varkappa_{2s} + \varkappa_{2r}\, \varkappa_{1s})\, n\, d\tau. \tag{24}$$

3.2. *Winkelkorrelation* (K_θ)

Nach FRAUENFELDER und LAWSON[10]) und anderen, in [10]) zitierten Autoren ergibt sich für den Korrekturfaktor K_θ unter der Voraussetzung, dass beide Szintillatoren zylindersymmetrisch sind und ihre Zylinderachsen sich im punktförmigen Präparat P schneiden:

$$K_\theta = 1 + \frac{1}{Q_0} \sum_{k=1}^{k_{max.}} Q_{2k}\, A_{2k}\, P_{2k}\,(\cos\theta). \tag{25}$$

θ Winkel zwischen den Szintillatorachsen

$P_{2k}\,(\cos\theta)$ Legendre-Polynome.

Die in Gleichung (25) auftretenden Koeffizienten A_{2k} beschreiben die Winkelkorrelation $W(\theta)$ zwischen den beiden koinzidierenden Strahlungen. Die exakte Definition von A_{2k} ist gegeben durch:

$$W(\theta) = 1 + \sum_{k=1}^{k_{max.}} A_{2k}\, P_{2k}\,(\cos\theta). \tag{26}$$

Die Koeffizienten Q_0 und Q_{2k} in Gleichung (25) beschreiben die «Verschmierung» der Winkelkorrelation durch die Ausdehnung der Szintillatoren; sie können wie folgt berechnet werden:

$$Q_{2k} = J_{1r}^{2k}\, J_{2s}^{2k} + J_{1s}^{2k}\, J_{2r}^{2k}. \tag{27}$$

Die Symbole J_{ij}^{2k} in Gleichung (27) bedeuten folgende Integrale:

$$J_{ij}^{2k} = \int_0^{\phi_{max.}} P_{2k}\,(\cos\phi_i)\, \varepsilon_{ij}\,(\phi_i)\, \sin\phi_i\, d\phi_i. \tag{28}$$

$\varepsilon_{ij}(\phi_i)$ ist die Wahrscheinlichkeit dafür, dass ein Quant der Strahlung j, dessen Bahn mit der Achse des Szintillators S_i den Winkel ϕ_i bildet (siehe Figur 7), im Szintillator S_i einen zählbaren Impuls erzeugt.

Die in Abschnitt 2.3 eingeführte Aufteilung in Ansprech- und Zählwahrscheinlichkeiten muss auch auf ε_{ij} angewandt werden:

$$\varepsilon_{ij}(\phi_i) = W'_{ij}(\phi_i)\, V'_{ij}(\phi_i). \tag{29}$$

$W'_{ij}(\phi_i)$ Wahrscheinlichkeit dafür, dass ein unter dem Winkel ϕ_i ausgesandtes Quant der Strahlung j im Szintillator S_i einen Impuls erzeugt;

$V'_{ij}(\phi_i)$ Wahrscheinlichkeit dafür, dass ein solcher Impuls durch den Analysator A_i (Figur 1) durchgelassen wird.

3.3. *Endliches Auflösungsvermögen der Apparatur* (K_T)

Nach MEYER, SCHMID und HUBER[3]) erhält man für die verwendete fast-slow-Koinzidenzapparatur[4]) bei Vernachlässigung von Termen höherer Ordnung:

$$K_T = 1 + T_1 N_1 + T_2 N_2, \tag{30}$$

N_i Einzelzählraten (siehe Abschnitt 2.3).

Die Koeffizienten T_i hängen von den im elektronischen Teil der Apparatur auftretenden Zeitkonstanten ab, nicht aber von der Zählgeometrie. Ist diese so eingestellt, dass das Verhältnis der beiden Einzelzählraten (N_1/N_2) bei den Messungen, die zur Bestimmung des Faktors K_T dienen (siehe Arbeit [3]), gleich ist wie bei der eigentlichen Zerfallsratenmessung, so können die Koeffizienten T_1 und T_2 in einem einzigen Koeffizienten

$$T = T_1 + \frac{N_2}{N_1} T_2 \tag{31}$$

zusammengefasst werden, und es ergibt sich für den Korrekturfaktor K_T:

$$K_T = 1 + T N_1 \text{ *}). \tag{32}$$

4. Beschreibung der Messapparatur

Die bereits in der Arbeit von Meyer, Schmid und Huber[3]) erwähnte, weitgehend automatisierte Koinzidenzapparatur nach Bell, Graham und Petch[4]) wurde fertig aufgebaut. Im folgenden sollen die wichtigsten Teile dieser Apparatur zusammengestellt und kurz beschrieben werden.

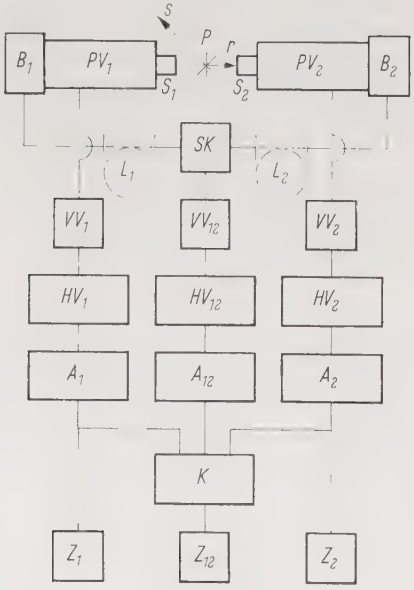


Fig. 5
Blockschema der Messapparatur

Figur 5 zeigt das Blockschema der Anordnung. Es bedeuten:

P Präparat
r, s Koinzidierende Strahlungen
S_i Szintillatoren

*) Möglichkeiten zur Bestimmung des in Gleichung (32) auftretenden Koeffizienten T werden in Abschnitt 5 angegeben.

PV_i Photovervielfacher (Philips, Typ 56 AVP)
B_i Impulshöhen-Begrenzungsstufen
L_i Variable Laufzeiten (Koaxialkabel)
SK Schnelle Zweifachkoinzidenzstufe
} vgl. Detailschema (Fig. 6)
VV_i Vorverstärker (Nuclear Enterprises, Typ NE 5202 A)
HV_i Hauptverstärker (Nuclear Enterprises, Typ NE 5202)
A_i Impulshöhen-Analysatoren (Nuclear Enterprises, Typ NE 5102/3)
K Dreifachkoinzidenzstufe (Auflösungszeit 0,65 μs)
Z_i Zähler (Volltransistorisiertes dekadisches Zählwerk mit 6 Dekaden. Die Ablesung der Zähler kann visuell oder elektrisch mit Hilfe einer automatischen Ableseapparatur[11]) erfolgen)

Der Grad der Automatisierung ist folgender:

Die Zähler Z_i können für eine stufenweise einstellbare Messzeit geöffnet und innerhalb $\pm 10^{-5}$ s für eine ebenfalls variierbare «Pausenzeit» gesperrt werden. In dieser Pausenzeit werden die laufende Zeit, die Messzeit sowie die drei Zählerstände von einer Schreibmaschine aufgeschrieben. Die Zähler lassen sich nach der Ablesung automatisch löschen. Nach Ablauf der Pausenzeit werden die drei Zähler gleichzeitig wieder geöffnet. Die Tätigkeit des Experimentators während der Messungen beschränkt sich darauf, von Zeit zu Zeit das Präparat zu entfernen, um den Nulleffekt zu messen oder die Laufzeiten L_1 oder L_2 durch Einschalten eines zusätzlichen Stückes Koaxialkabel zu verlängern, um zufällige Koinzidenzen zu zählen. Die langen Messzeiten, welche die Messmethode mit dieser Apparatur im Vergleich zur $4\pi\,\beta$-γ-Methode[5]) erfordert, fallen dank dieser Automatisierung kaum mehr störend ins Gewicht.

Ausser den in Figur 5 aufgeführten Apparaten wurde zusätzlich ein an die Analysatoren A_i angepasster Impulsspektrograph, bestehend aus «counting-rate-meter» (Institut für angewandte Physik der Universität Basel) und Schreiber (Honeywell-Brown, Typ 153X18, angepasst an die Analysatoren A_i), verwendet.

Die Szintillatoren sowie die zugehörigen Photovervielfacher und die Begrenzungsstufen B_i sind in einem speziellen Chassis montiert. Sie können auf Zeißschienen näher an das Präparat heran oder von ihm weg verschoben werden. Die beiden Zeißschienen sind um eine feste Achse schwenkbar. Auf dieser Achse ist bei Messungen nach der γ-γ-Methode, in allen drei Dimensionen verschiebbar, das Präparat montiert. Bei Messungen nach der β-γ-Methode wird das Präparat auf der Innenseite der Szintillator-Lichtabschirmung befestigt.

Figur 6 zeigt das Schaltschema des «schnellen» Teils der Elektronik[12]). Die Pentode E 810 F in der Begrenzungsstufe wurde wegen ihrer grossen Steilheit (50 mA/V) und genügender Schnelligkeit gewählt, die Diode OA 73 in der schnellen Koinzidenzstufe wegen des scharfen Knicks in der Charakteristik, der ein günstiges Verhältnis Einzelimpulshöhe/Koinzidenzimpulshöhe am Ausgang ergibt. Die Anstiegszeit der Begrenzungsstufe B_i wurde mit Hilfe eines Hg-Testimpulsgenerators und eines «sampling»-Oszillographen zu < 1 ns gemessen. Die in Figur 6 hervorgehobenen Verbindungen sind schnelle Impulsleitungen und müssen kurz (wenige Zentimeter) sein. Das ist der Grund dafür, dass die Begrenzungsstufen B_i in den Photovervielfacher-Chassis untergebracht wurden. Die Schaltelemente am Ausgang der schnellen Koinzidenzstufe (Figur 6) dienen dazu, Impulse mit schnellem Anstieg (< 100 ns) und einer Abklingzeit von etwa 15 μs zu formen, welche als Eingangsimpulse des Hauptverstärkers HV_{12} geeignet sind.

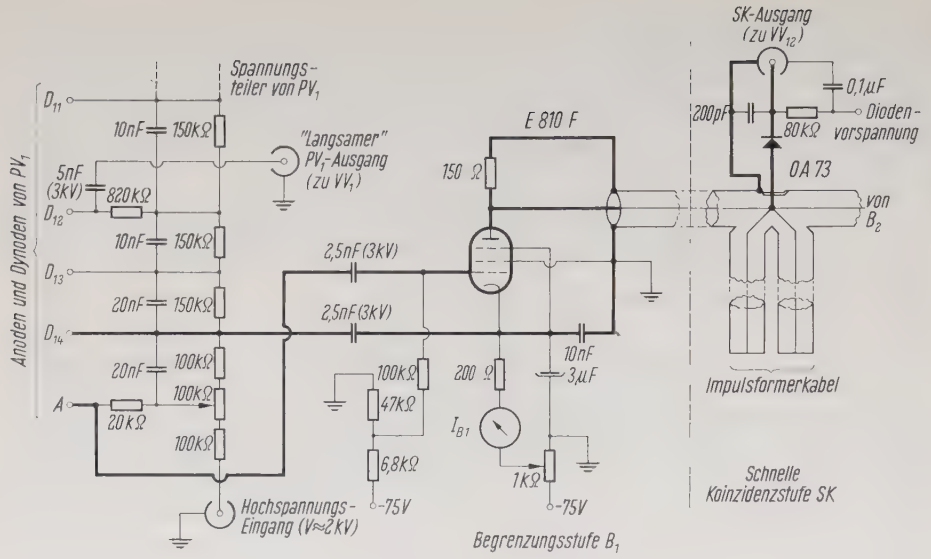


Fig. 6
«Schnelle» Elektronik

Besondere Vorsicht muss bei der Erdung des «schnellen» Kanals angewandt werden, damit nicht Impulse aus diesem Kanal in die Kanäle 1 und 2 (Figur 5) übertragen werden und falsche Dreifachkoinzidenzen ergeben. Ein Verfahren, um Übertragungen dieser Art zu entdecken, besteht darin, dass alle apparativen Einstellungen der auszuführenden Zerfallsratenmessung beibehalten werden, mit Ausnahme der Dreifachkoinzidenzstufe K, deren «12»-Eingang blockiert wird. Nun werden «langsame» Zweifachkoinzidenzen gezählt, zuerst bei gleichen Laufzeiten L_1 und L_2 (Figur 5), darauf bei $L_1 > L_2 + 2\,L$ (L Laufzeit der Impulsformerkabel; siehe Figur 6), so dass keine wahren schnellen Koinzidenzen zustande kommen. Wenn Übertragungen der beschriebenen Art auftreten, werden im ersten Fall mehr langsame Zweifachkoinzidenzen gezählt als im zweiten.

5. Bisher ausgeführte Messungen

Mit der soeben beschriebenen Apparatur wurden bisher Zerfallsratenmessungen folgender Isotope durchgeführt:

nach der β-γ-Methode ^{198}Au, ^{60}Co, ^{203}Hg, ^{95}Nb;

nach der γ-γ-Methode ^{60}Co, ^{22}Na, ^{46}Sc.

Wir beschränken uns hier auf die Beschreibung je einer Messung nach der β-γ-Methode (^{198}Au) und der γ-γ-Methode (^{60}Co).

5.1. Messung von ^{198}Au nach der β-γ-Methode

^{198}Au-Präparate wurden zur Eichung von Reaktor-Neutronenflüssen sowie zur Quellstärkenbestimmung einer Neutronenquelle[13]) gemessen. Als Präparate lagen kreisförmige Goldfolien von einigen mg/cm^2 Dicke und 1 bis 2 cm Durchmesser vor.

Die Präparat-Szintillator-Geometrie entsprach Figur 3 (organische Szintillatoren). Die Analysatoren A_i waren so eingestellt, dass im 1. Zähler Impulse von 0,48 bis 0,96 MeV, im zweiten solche von 0,21 bis 0,27 MeV gezählt wurden. Ausser dem häufigsten Zerfall β-γ (94,9%) treten bei ^{198}Au noch eine Reihe von Nebenzweigen auf, zum Beispiel β-e (γ konvertiert; 3,7%), β'-γ'-γ (1,1%), β'-γ'' (0,2%), und andere. Diese seltenen Nebenzweige des Zerfallsschemas machten einen Korrekturfaktor

$$K_Z = 0{,}996$$

erforderlich. Die Ansprech- und Zählwahrscheinlichkeiten W_{ij} und V_{ij} wurden nach verschiedenen der in Anhang I beschriebenen Verfahren bestimmt und in Formel (14) für den Summenimpulskorrekturfaktor K_V eingesetzt. Es ergab sich:

$$K_V = 0{,}9997 .$$

Die Abhängigkeit der Ansprechwahrscheinlichkeiten vom Ort des zerfallenden Kerns wurde nach den Gl. (33) und (36) berechnet. Formel (21) für den Ausdehnungskorrekturfaktor $K_\varkappa$ ergab hieraus bei allen gemessenen Folien

$$K_\varkappa = 1{,}000 .$$

Die kurze Halbwertszeit von ^{198}Au ermöglichte eine einfache Bestimmung des Koeffizienten T, der in die Formel (32) für den Korrekturfaktor K_T eingeht. (Durch den Korrekturfaktor K_T wird das endliche Auflösungsvermögen der Apparatur berücksichtigt.) Die Zerfallsratenmessung eines Testpräparates wurde hierzu wiederholt, nachdem die Aktivität auf etwa die Hälfte abgeklungen war. Aus der Zeitdifferenz und der Halbwertszeit liess sich das Verhältnis der beiden wahren Zerfallsraten bestimmen. Mit Gleichungen (20) und (32) liessen sich die Unbekannten T und N bestimmen. Bei unserer Messung ergab sich

$$T = 1{,}5\ \mu\text{s} .$$

Der Gesamtfehler (statistischer Fehler und systematischer Fehler quadratisch addiert) des Endresultates betrug $3^0/_{00}$; es ergab sich bisher keine Möglichkeit der Kontrolle mit anderswo geeichten Präparaten.

5.2. Messung von ^{60}Co nach der γ-γ-Methode

Nach der γ-γ-Methode wurden mehrere ^{60}Co-Aktivitäten absolut bestimmt, die vorher von internationalen Eichstellen mit Hilfe der $4\pi\,\beta$-γ-Methode[5]) geeicht worden waren. Eine unserer Messungen wird im folgenden beschrieben: Vom Bureau International des Poids et Mesures erhielten wir 5 ^{60}Co-Präparate in Form von dünnen Folien von 1,2 cm Durchmesser, die nach der $4\pi\,\beta$-γ-Methode mit einer Genauigkeit von $2^0/_{00}$ geeicht waren. Die Aktivität der Präparate war für das Erreichen einer genügenden statistischen Genauigkeit etwas klein (je etwa 0,3 μC), so dass wir die 5 Folien aufeinanderlegten und als ein Präparat massen. Wir verwendeten organische, zylinderförmige Szintillatoren bei 180°-Geometrie (Präparatmittelpunkt auf der gemeinsamen Achse der beiden Szintillatoren). Die Szintillatorabmessungen waren folgende (siehe Figur 7):

$$r_0 = 1{,}9\ \text{cm} ; \qquad l_0 = 3{,}3\ \text{cm} ;$$

Präparatabstände $z_1 = z_2 = r_0$.

Der Pegel der beiden Diskriminatoren A_i wurde auf 0,40 MeV eingestellt, wodurch Bedingung (15) erfüllt war. Die Berechnungen der Ansprech- und Zählwahrscheinlichkeiten W_{ij} und V_{ij} ergaben folgende Werte:

$$W_{ir} = 1{,}4 \cdot 10^{-2}\,; \qquad W_{is} = 1{,}3 \cdot 10^{-2}\,;$$

$$V_{ir} = 0{,}59\,; \qquad V_{is} = 0{,}64\,; \qquad V_{i(r+s)} = 0{,}925\,.$$

Mit Gleichung (42) ergab sich:

$$K_{\Gamma} = 1{,}007\,.$$

Die übrigen Korrekturfaktoren sind in Tabelle 2 verzeichnet. K_θ wurde nach Gleichung (46) berechnet, $K_\varkappa$ nach Gleichung (24), K_T nach Gleichung (32).

Die Endresultate sind in Tabelle 1 zusammengestellt. Es zeigt sich, dass nach der γ-γ-Methode in der jetzigen Form auch relativ starke und ausgedehnte Aktivitäten mit einer Genauigkeit von wenigen Promille geeicht werden können.

Tabelle 1

Präparat Nr.	Beschreibung des Präparates	$4\pi\beta$-γ-Eichstelle	Zerfallsrate am 1. 1. 64	
			Eichstelle $4\pi\beta$-γ-Methode	Unsere Messung γ-γ-Methode
1	Quasipunktförmiges Präparat	NBS, Washington	(0,4379 ± 0,0022) μC	(0,4366 ± 0,0022) μC
2	1,8 g $CoCl_2$-Lösung in Glasampulle	PTB, Braunschweig	(2,76 ± 0,03) μC	(2,752 ± 0,015) μC
3	1,0 g $CoCl_2$-Lösung in Glasampulle	NPL, Teddington	(74,8 ± 0,4) μC	(74,7 ± 0,4) μC
4	$CoCl_2$-Schicht auf VYNS-Folie	BIPM, Sèvres	(1,3331 ± 0,0022) μC	(1,3313 ± 0,0027) μC

Tabelle 2

Korrekturfaktoren:

Präparat	NBS	PTB	NPL	BIPM
Summenimpulse (K_V)	1,008	1,003	1,0005	1,007
Winkelkorrelation (K_θ)	1,059	1,082	1,101	1,054
Präparatausdehnung ($K_\varkappa$)	1,000	0,988	0,998	1,000
Apparatives Auflösungsvermögen (K_T)*)	1,0005	1,0013	1,0055	0,9978

*) Der Korrekturfaktor K_T wurde bei den Co^{60}-Messungen mit Hilfe zweier Testpräparate bestimmt (siehe Arbeit [3]).

Diese Arbeit wurde durch die finanzielle Unterstützung des Schweizerischen Nationalfonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung ermöglicht. Meinem verehrten Lehrer Herrn Prof. Dr. P. HUBER danke ich für die stetige Anleitung und Förderung, die er dieser Arbeit angedeihen liess. Dank gebührt ferner Herrn Prof. Dr. K. P. MEYER (Bern) und Herrn Prof. Dr. E. BAUMGARTNER für viele anregende und klärende Diskussionen und Herrn A. WALTHERT für Mitarbeit beim Aufbau der Apparatur und bei der Durchführung der Messungen.

Anhang I

Zur Berechnung der Ansprech- und Zählwahrscheinlichkeiten

Wie schon in der Einleitung erwähnt wurde, macht die Anwendung der Koinzidenzmethode die Berechnung von Zähler-Ansprechwahrscheinlichkeiten nicht völlig überflüssig, hat aber zur Folge, dass Fehler bei diesen Berechnungen nur in höherer Ordnung ins Resultat eingehen. In diesem Abschnitt sollen einige Verfahren zur Berechnung von Ansprechwahrscheinlichkeiten W_{ij} und Zählwahrscheinlichkeiten V_{ij} für Szintillationszähler angegeben werden.

I.1. Direkte Berechnung von W_{ij}

I.1a. β-Teilchen

Wenn die in Figur 3 dargestellte Anordnung verwendet wird, kann die β-Ansprechwahrscheinlichkeit $W_{1\beta}$ des Szintillators S_1 (siehe Figur 3) wie folgt berechnet werden:

$$W_{1\beta} = \frac{1}{4\pi} \int_{\Omega_1} (1 - \eta_{abs.})\, d\Omega, \tag{33}$$

$\eta_{abs.}$: Wahrscheinlichkeit dafür, dass ein in ein bestimmtes Raumwinkelelement $d\Omega$ ausgesandtes β-Teilchen seine ganze Energie verliert, bevor es in S_1 eindringen kann.

Das Integral muss über den Raumwinkel Ω_1, den S_1 mit P (Figur 3) bildet, erstreckt werden. Die der Gl. (33) zugrundeliegenden Voraussetzungen (isotrope Strahlung; Streuung in P und in den umliegenden Teilen vernachlässigbar; jedes in S_1 eindringende Teilchen erzeugt einen Impuls) waren bei den bisher ausgeführten Messungen (siehe Abschnitt 5) genügend genau erfüllt.

Bei stark ausgedehnten Präparaten gilt Gleichung (33) für ein Volumenelement des Präparates. Für das ganze Präparat ergibt sich:

$$W_{1\beta} = \frac{1}{4\pi N} \int_{\tau_P} \int_{\Omega_1} n\,(1 - \eta_{abs.})\, d\Omega\, d\tau, \tag{34}$$

N Zerfallsrate,
n spezifische Zerfallsrate im Volumenelement $d\tau$,
τ_P Volumen des Präparates.

I.1b. γ-Quanten

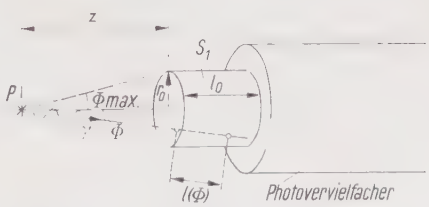


Fig. 7
Zur Berechnung von $W_{1\gamma}$

Bei γ-Quanten muss berücksichtigt werden, dass die Wahrscheinlichkeit dafür, dass ein in den Szintillator eindringendes Quant einen Impuls erzeugt, in der Regel kleiner als 1 ist. Gleichung (34) muss in diesem Fall ersetzt werden durch

$$W_{i\gamma} = \frac{1}{4\pi N} \int_{\tau_P} \int_{\Omega_i} n\,(1-\eta_{abs.})\,(1-e^{-\mu l})\,d\Omega\,d\tau, \tag{35}$$

μ totaler linearer Absorptionskoeffizient im Szintillator S_i,
l Weglänge der Bahn eines ins Raumwinkelelement $d\Omega$ ausgesandten γ-Quants in S_i (siehe Figur 7).

Bei den bisher ausgeführten Messungen (Abschnitt 5) wurden zylindrische organische Szintillatoren verwendet. Bei den auftretenden γ-Energien waren Photoeffekt und Paarbildung gegenüber dem Comptoneffekt zu vernachlässigen, das heisst es galt:

$$\mu = \sigma_c\, n',$$

σ_c totaler Comptonwirkungsquerschnitt pro Elektron,
n' Elektronendichte in S_i.

Für ein punktförmiges, auf der Zylinderachse des Szintillators S_i befindliches Präparat P kann Gleichung (35) im soeben beschriebenen Spezialfall wie folgt vereinfacht werden:

$$W_{i\gamma} = \frac{1}{2} \int_0^{\phi_{max.}} (1-e^{-\sigma_c n' l(\phi)}) \sin\phi\, d\phi\,, \tag{36}$$

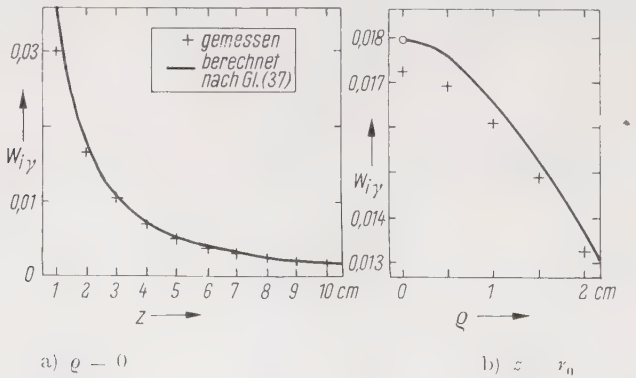
wobei zu beachten ist, dass in Gleichung (36) die (für γ-Quanten unbedeutende) Absorption zwischen zerfallendem Kern und S_i vernachlässigt ist.

Für nicht zu kleine Abstände zwischen P und S_i kann Gleichung (36) durch folgende Näherungsformel ersetzt werden:

$$W_{i\gamma} \approx \frac{r_0^2}{4\,d_0^2}\,(1-e^{-\sigma_c n' l_0}), \tag{37}$$

r_0 Zylinderradius von S_i,
d_0 Abstand zwischen P und dem Schwerpunkt von S_i,
l_0 Höhe von S_i.

In Gleichung (37) ist $(r_0^2/4\,d_0^2)$ ungefähr gleich dem von S_i und P gebildeten Raumwinkel; der Wert ist für kleine Abstände d_0 zu klein, doch wird dieser Effekt dadurch, dass für die mittlere Weglänge l in S_i der etwas zu grosse Wert l_0 eingesetzt ist, weitgehend kompensiert.



a) $\varrho = 0$ b) $z = r_0$

Fig. 8

Die Ansprechwahrscheinlichkeit $W_{i\gamma}$ als Funktion des Abstandes z des Präparates (^{137}Cs) von der Stirnfläche des Szintillators und als Funktion des Abstandes ϱ des Präparates von der Achse des Szintillators. Szintillatorabmessungen: $l_0 = 3{,}3$ cm; $r_0 = 1{,}9$ cm.

Zur Prüfung der Näherungsformel (37) wurde die Abhängigkeit der Ansprechwahrscheinlichkeit $W_{i\gamma}$ vom Abstand z eines quasipunktförmigen ^{137}Cs-Präparates von der Szintillatorstirnfläche gemessen und nach Gleichung (37) berechnet. Durch eine direkt auf die Szintillatorstirnfläche gelegte Al-Scheibe von 1,5 mm Dicke konnte die ^{137}Cs-β-Strahlung absorbiert werden. Die Resultate sind in Figur 8 dargestellt. Figur 8a zeigt, dass der nach Gleichung (37) berechnete Wert von $W_{i\gamma}$ für $z \geqq 2$ cm um weniger als 5% vom Messwert abweicht. (Bei allen bisherigen Messungen war ein Fehler der Ansprechwahrscheinlichkeit von 5% zulässig). Aus Figur 8b ist ersichtlich, dass Gleichung (37) auch dann befriedigende Genauigkeit ergibt, wenn P sich nicht auf der Zylinderachse von S_i befindet (für d_0 muss auch in diesem Fall der Abstand zwischen P und dem Schwerpunkt von S_i eingesetzt werden).

Bei den experimentellen Kurven in den Figuren 8a und 8b wurde ein Punkt ($z = 10$ cm; $\varrho = 0$) an den nach der strengen Formel (36) berechneten Wert angeglichen, darauf die Ortsabhängigkeit von $W_{i\gamma}$ aus dem gemessenen Verlauf der Zählrate N_i (siehe Gleichung (6)) bestimmt.

I.2. Berechnung der Zählwahrscheinlichkeiten V_{ij}

Die Zählwahrscheinlichkeiten können aus den zugehörigen Impulsspektren wie folgt berechnet werden:

$$V_{ij} = \frac{\int_{E_{Ai}}^{\infty} \left(\frac{dm_{ij}}{dE}\right)_E dE}{\int_0^{\infty} \left(\frac{dm_{ij}}{dE}\right)_E dE}, \tag{38}$$

wobei das Integral im Zähler über die vom Analysator A_i durchgelassenen Impulshöhenbereiche erstreckt werden muss.

Im folgenden werden verschiedene Verfahren zur Bestimmung von V_{ij} nach Gleichung (38) angegeben:

I.2a. Abschätzung von V_{ij} bei theoretisch bekannten Spektren

Wenn es möglich ist, die Einzelimpulsspektren theoretisch zu ermitteln und durch algebraische Funktionen zu approximieren, so lassen sich die Integrale in Gleichung (38) analytisch berechnen. Als Beispiel hiefür sei die Approximation eines γ-Comptonspektrums durch ein rechteckförmiges Spektrum genannt. Um die Genauigkeit einer solchen Abschätzung zu prüfen, wurde für die ^{137}Cs-γ-Strahlung (Experimentelle Anordnung siehe Text zu Figur 8) die Zählwahrscheinlichkeit $V_{i\gamma}$ als Funktion des Diskriminatorpegels E_{Ai} gemessen und unter Annahme eines rechteckförmigen γ-Spektrums berechnet (Figur 9). Figur 9 zeigt, dass für $E_{Ai} < 0{,}3$ MeV ($E_{i\gamma\,max.} = 0{,}48$ MeV) der berechnete Wert von $V_{i\gamma}$ um weniger als 5% vom Messwert abweicht.

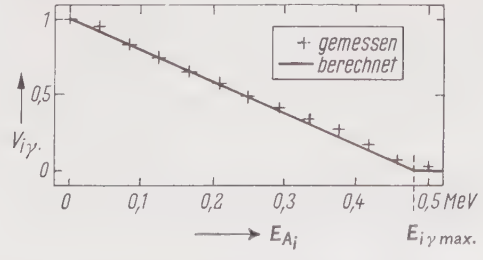


Fig. 9

Die Zählwahrscheinlichkeit $V_{i\gamma}$ als Funktion des Diskriminatorpegels E_{Ai} für die ^{137}Cs-γ-Strahlung (Maximalenergie der Comptonelektronen $E_{i\gamma\,max.} = 0{,}48$ MeV)

I. 2b. Aufnahme des Gesamtspektrums

Wie in Abschnitt 2.3 gezeigt wurde, tritt im Szintillator ein Gesamtspektrum auf, das sich aus den beiden Einzelimpulsspektren und dem Summenimpulsspektrum zusammensetzt. Das Gesamtspektrum kann mit Hilfe eines Impulsspektrographen experimentell bestimmt werden. Wenn die Form der Einzelimpulsspektren und des Summenimpulsspektrums theoretisch bekannt ist, kann die korrekte Aufteilung des Gesamtspektrums gefunden und V_{ij} nach Gleichung (38) (zum Beispiel durch graphische Integration) bestimmt werden.

I. 2c. Aufnahme der Einzelimpulsspektren

Wenn 1-Kanal-Impulshöhenanalysatoren mit kontinuierlich verschiebbarem Kanal zur Verfügung stehen, können die Einzelimpulsspektren direkt bestimmt werden:

Bei β-γ-Koinzidenzen wird dabei zuerst das Gesamtspektrum in S_1 (siehe Figur 3) aufgenommen, darauf mit Hilfe eines Absorbers, der die β-Strahlung vollständig absorbiert, dessen Einfluss auf die γ-Strahlung aber vernachlässigbar ist (Graphit), das γ-Einzelimpulsspektrum gemessen. Das Gesamtspektrum ist die Summe der drei Spektren $(dm_{1\beta}/dE)$, $(dm_{1\gamma}/dE)$ und $(dm_{1(\beta+\gamma)}/dE)$. Wenn die β-Strahlung vor dem Szintillator S_1 absorbiert wird, treten keine Summenimpulse mehr auf (vergleiche Abschnitt 2.3.), und es wird folglich das Spektrum sämtlicher γ-Impulse $(dM_{1\gamma}/dE)$ gemessen. Durch Multiplizieren aller Ordinaten mit dem Faktor $(1 - W_{1\beta})$ kann daraus das etwas niedrigere Einzelimpulsspektrum $(dm_{1\gamma}/dE)$ gewonnen werden. Subtraktion dieses γ-Einzelimpulsspektrums und des Summenimpulsspektrums (welches berechnet werden muss; siehe Abschnitt I.2d) vom Gesamtspektrum ergibt das β-Einzelimpulsspektrum $(dm_{1\beta}/dE)$.

Bei γ-γ-Koinzidenzen erfordert die Aufnahme der Einzelimpulsspektren die Benützung der ganzen Koinzidenzapparatur (Figur 1). Bei der Bestimmung der Spektren im Szintillator S_1 soll dabei der Analysator A_2 im anderen Kanal so eingestellt werden, dass im Kanal 2 die Einzelimpulse einer der beiden Strahlungen, zum Beispiel r, nicht durch A_2 durchgelassen werden $(V_{2r} = 0)$. Es sind dann nur Koinzidenzen zwischen $1\,r$- und $2\,s$-Impulsen möglich, und bei Verschiebung des Kanals im Analysator A_1 zeigt die Koinzidenzrate denselben Verlauf wie das $1\,r$-Einzelimpulsspektrum. Damit ist die Form des $1\,r$-Spektrums bekannt. Die Höhe des Spektrums lässt sich aus der Höhe des Koinzidenzimpulsspektrums nach folgender Gleichung bestimmen, die aus den Formeln (6) und (7) für N_1, N_2 und N_{12} abgeleitet werden kann:

$$\left(\frac{dm_{1r}}{dE}\right) = \left(\frac{dN_{12}}{dE}\right) \frac{N\,(1 - W_{1s})}{N_2\,K_{V2}}\,. \tag{39}$$

K_{V2} ist der Korrekturfaktor für Summenimpulse (vergleiche Formel (16)). Für N muss man das Resultat einer provisorischen Zerfallsratenmessung einsetzen. Das $1\,s$-Einzelimpulsspektrum kann durch Subtraktion des $1\,r$-Einzelimpulsspektrums und des berechneten Summenimpulsspektrums (siehe I.2d) vom Gesamtspektrum gefunden werden.

I. 2d. Berechnung des Summenimpulsspektrums

Die Form des Summenimpulsspektrums kann mit Hilfe des folgenden Faltungsintegrals berechnet werden:

$$\left(\frac{dm_{i(r+s)}}{dE}\right)_E = \text{const.} \int_0^\infty \left(\frac{dm_{ir}}{dE}\right)_{E'} \left(\frac{dm_{is}}{dE}\right)_{E-E'} dE'. \tag{40}$$

Es genügt zur angenäherten Berechnung des Integrals in Gleichung (40), die beiden Einzelimpulsspektren (dm_{ir}/dE) und (dm_{is}/dE) durch wenige Trapeze zu approximieren, wonach analytisch integriert werden kann.

Der Wert der Konstanten in Gleichung (40) ergibt sich daraus, dass die Fläche des Summenimpulsspektrums gleich der Menge $m_{i(r+s)}$ (siehe Gl. (4)) sein muss.

I.3. Indirekte Berechnung der Ansprechwahrscheinlichkeiten W_{ij} aus den Zählraten und den Zählwahrscheinlichkeiten

Wenn nach einem der im vorangehenden Abschnitt angegebenen Verfahren die Zählwahrscheinlichkeiten V_{ij} bei einer bestimmten Einstellung des Analysators A_i bestimmt worden sind,

ferner die Zerfallsrate N aus einer provisorischen Zerfallsratenmessung bekannt ist, können sowohl bei β-γ- wie bei γ-γ-Koinzidenzen die Ansprechwahrscheinlichkeiten W_{ij} aus den in den Zählern Z_i (Figur 1) auftretenden Zählraten nach den Formeln (6) bestimmt werden. Die zur Bestimmung der 4 Grössen W_{ij} nötige Anzahl von 4 Gleichungen kann dadurch erreicht werden, dass die Zählraten N_1 und N_2 bei je 2 verschiedenen Analysatoreinstellungen gemessen werden. Ein anderes Verfahren besteht darin, die Zählraten nur bei je einer Analysatoreinstellung zu messen und aus den Absorptionseigenschaften der Strahlungen r und s das Verhältnis W_{ir}/W_{is} zu berechnen, wodurch man ebenfalls die erforderliche Anzahl von 4 Gleichungen erreicht.

Anhang II

Die Erfüllung der Bedingungen $W_{ir} V_{ir} = W_{is} V_{is}$ bei γ-γ-Koinzidenzen

Im folgenden soll auf die Erfüllung der Bedingung (15), die im Abschnitt 2.5 nur grob behandelt wurde, eingegangen werden: Diese Bedingung ist dann erfüllt, wenn der (bzw. die) Pegel des Analysators A_i aus den beiden Spektren (dM_{ir}/dE) und (dM_{is}/dE) gleich grosse Flächen herausschneidet. Nach der Definition von M_{ij} (Formel (1)) haben diese Flächen den Betrag $N W_{ir} V_{ir}$ bzw. $N W_{is} V_{is}$; aus der Gleichheit dieser Flächen ergibt sich Gleichung (15).

Gleichheit der entsprechenden Flächen in den Einzelimpulsspektren (dm_{ir}/dE) und (dm_{is}/dE) würde bedeuten:

$$W_{ir} (1 - W_{is}) V_{ir} = W_{is} (1 - W_{ir}) V_{is}; \tag{41}$$

Gleichung (15) ist also in diesem Fall im allgemeinen nicht exakt erfüllt. In der Praxis ist allerdings wegen der Kleinheit der Ansprechwahrscheinlichkeiten W_{ij} für γ-Quanten die Abweichung meist bedeutungslos.

Anhang III

«Gekoppelte» Korrekturfaktoren*)

III.1. Summenimpulskorrektur bei Auftreten einer Winkelkorrelation (K_V^0)

Formel (16) für den Faktor K_V muss bei Auftreten einer Winkelkorrelation ersetzt werden durch:

$$K_{Vi}^{\theta} = \left(1 - K_0^i W_{ir} \frac{V_{ir} + V_{is} - V_{i(r+s)}}{2 V_{is}}\right)^{-1}. \tag{42}$$

Nach der Definition der Summenimpulse (Abschnitt 2.3) ist der in Gleichung (42) auftretende Faktor K_θ^i gleich dem Korrekturfaktor K_θ (Abschnitt 3.2) für zwei zusammenfallende Szintillatoren ($\theta = 0$). Aus Gleichung (25) erhält man:

$$K_\theta^i = 1 + \frac{1}{Q_0^i} \sum_{K=1}^{K_{max.}} Q_{2k}^i A_{2k}; \tag{43}$$

statt Gleichung (27) ergibt sich:

$$Q_{2k}^i = J_{ir}^{2k} J_{is}^{2k}; \tag{44}$$

statt Gleichung (28) gilt folgende Definition der Grössen J_{ij}^{2k}:

$$J_{ij}^{2k} = \int_0^{\phi_{max.}} P_{2k} (\cos \phi_i) W_{ij}' (\phi_i) \sin \phi_i \, d\phi_i. \tag{45}$$

*) Vergleiche Seite 416

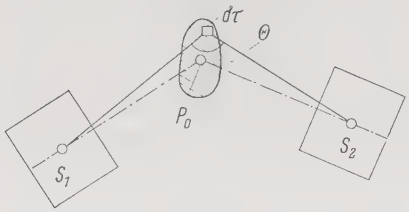
Der Herleitung der Gleichung (45) liegt die Annahme zugrunde, dass die Form des Summenimpulsspektrums und damit die Zählwahrscheinlichkeit $V_{i\,(r+s)}$ nicht von den Bahnwinkeln ϕ_i der beiden Quanten r und s, die den Summenimpuls bilden, abhängt. Diese Annahme erwies sich bei allen bisher ausgeführten Zerfallsratenmessungen als zulässig.

III.2. Winkelkorrelationskorrektur bei ausgedehntem Präparat ($\overline{K}_\theta$)

Bei ausgedehnten Präparaten ist der Korrekturfaktor K_θ in Gleichung (20) durch den über das Volumen τ_P des Präparates gemittelten Wert $\overline{K}_\theta$ zu ersetzen:

$$\overline{K}_\theta = \frac{1}{N} \int_{\tau_P} K_\theta \, n \, d\tau \quad . \tag{46}$$

Bei den bisherigen Messungen wurde zur Berechnung der Abhängigkeit des Faktors K_θ vom Ort des zerfallenden Kerns folgendes einfache Näherungsverfahren benützt: Man verwendet Gleichung (25). Die Abhängigkeit der Grössen Q_{2k} vom Ort des zerfallenden Kerns wird vernachlässigt. Die Größen Q_{2k} werden für den Schnittpunkt P_0 (Figur 10) der Szintillatorachsen berechnet (Gleichung (27)). Die Legendre-Polynome $P_{2k}(\cos\theta)$ berechnet man für den Winkel, der durch den zerfallenden Kern und die Schwerpunkte der beiden Szintillatoren aufgespannt wird.



Figur 10
Näherungsverfahren für die Berechnung des Faktors $\overline{K}_\theta$

Dieses Näherungsverfahren wurde mit Hilfe punktförmiger Testpräparate geprüft (siehe Arbeit [3])); es erwies sich bei allen bisher gemessenen Präparaten als zulässig.

Literatur

[1]) J. L. Putman, *Measurement of Disintegration Rate*, in «*Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy*» (ed. K. Siegbahn, Amsterdam 1955), pag. 835f.
[2]) *idem*, pag. 841.
[3]) K. P. Meyer, P. Schmid und P. Huber, Helv. Phys. Acta *32*, 423 (1959).
[4]) R. E. Bell, R. L. Graham und H. E. Petch, Canad. J. Phys. *30*, *35* (1952).
[5]) P. J. Campion, International Journal of Applied Radiation and Isotopes *4*, 232 (1959).
[6]) J. Steyn und F. J. Haasbroek, Proc. Sec. UN Internat. Conf. Peaceful Uses of Atomic Energy, Vol. *21*, 95, Genf (1958).
[7]) R. Frosch, P. Huber und F. Widder, Helv. Phys. Acta *35*, 305 (1962).
[8]) J. L. Putman, AERE, I/M *26*, Harwell (1957).
[9]) H. Frauenfelder, *Angular Correlation*, in «*Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy*» (vgl. [1])).
[10]) J. S. Lawson und H. Frauenfelder, Phys. Rev. *91*, 649 (1953).
[11]) E. Baldinger, W. Haelg und P. Wehrli, Z. angew. Math. Phys. *9*, 521 (1959).
[12]) A. Maier und K. P. Meyer, Helv. Phys. Acta *30*, 611 (1957).
[13]) C. v. Planta und P. Huber, Helv. Phys. Acta *29*, 375 (1956).
[14]) R. Frosch, P. Huber, F. Widder und A. Walthert, Helv. Phys. Acta *36*, 622 (1963).

Curriculum vitae

Ich, REINHART FROSCH, bin geboren am 4. Juni 1935 in Zürich als Sohn von Friedrich Frosch, Sekundarlehrer, und Ida Frosch, geb. Bachmann.

Von 1942 bis 1948 besuchte ich in Zürich die Volksschule, darauf bis 1954 das Kantonale Realgymnasium Zürich, das ich mit der Matur abschloss. Anschliessend studierte ich an der Eidgenössischen Technischen Hochschule während 8 Semestern Physik, unter anderen bei den Professoren Dr. W. Pauli, Dr. P. Scherrer und Dr. G. Busch. Im Wintersemester 1958/59 verfasste ich unter der Anleitung von Herrn Prof. Dr. P. Scherrer eine Diplomarbeit und erhielt im Frühjahr 1959 das Diplom der ETH als Experimentalphysiker.

Darauf war ich während eines Jahres als Physiklehrer an der Kantonsschule Wetzikon (ZH) tätig. Seit dem Sommersemester 1960 bin ich an der Philosophisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität Basel immatrikuliert. Neben den Arbeiten an der vorliegenden Dissertation unter der Anleitung von Herrn Prof. Dr. P. Huber widmete ich mich hier der Weiterbildung in Kernphysik, für die ich in erster Linie Herrn Prof. Dr. E. Baumgartner zu danken habe.